



TITLE:

1/5-depleted square lattice上のハイゼンベルグ反強磁性体の磁化過程(基礎物理学研究所短期研究会「量子効果が顕著な役割を果たす磁性現象の新展開」,研究会報告)

AUTHOR(S):

福元, 好志; 小口, 明秀

CITATION:

福元, 好志 ...[et al]. 1/5-depleted square lattice上のハイゼンベルグ反強磁性体の磁化過程(基礎物理学研究所短期研究会「量子効果が顕著な役割を果たす磁性現象の新展開」,研究会報告). 物性研究 1999, 72(6): 779-781

ISSUE DATE:

1999-09-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96699>

RIGHT:

1/5-depleted square lattice 上のハイゼンベルグ反強磁性体の磁化過程

東京理科大学 理工学部 福元 好志, 小口 明秀

§1. はじめに

1/5-depleted square lattice (図 1 参照) 上の第 2 近接相互作用までを含むハイゼンベルグ反強磁性体

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle n, n' \rangle} J_{n, n'} \vec{S}_n \cdot \vec{S}_{n'} \quad (1)$$

は CaV_4O_9 の V^{4+} スピン ($S=1/2$) に対するモデルハミルトニアンである。ここで、 $J_{n, n'}$ は最近接プラケット (ダイマー) ボンドに対して $J_{\text{ep}}(J_{\text{ed}})$ 、第 2 近接プラケット (ダイマー) ボンドに対して $J_{\text{cp}}(J_{\text{cd}})$ とする。 CaV_4O_9 は、Taniguchi *et al.* の一様帯磁率測定によってスピングャップ ($=107(\text{K})$) が見出されて以来、[1] 2 次元初のスピンギャップ系ということもあり精力的な研究が行われてきた。一様帯磁率、3 重項励起スペクトルの実験データに基づき、交換相互作用は $J_{\text{cp}} = 14.0$, $J_{\text{ed}} = 7.7$, $J_{\text{ep}} = 7.5$, $J_{\text{cd}} = 1.7(\text{meV})$ と推定されている。[1, 2] CaV_4O_9 中では次近接プラケットボンド上の相互作用 J_{cp} が最も支配的であり、従って CaV_4O_9 をスピンプラケットの結合系と見ることができる。又、図 1 から明らかなように、プラケット間結合には競合が存在し、 CaV_4O_9 における大きなスピングャップ $\sim 0.7J_{\text{cp}}$ の形成にはこのプラケット間結合の競合も重要な役割を果たしている。

この数年来、量子スピン系に見られる巨視的量子効果として、磁化過程に現れるプラトーが盛んに調べられている。これまでに磁化プラトーが得られている系として、(i) 周期構造を持つ 1 次元鎖、(ii) 対角線相互作用を持つラダー系がある。[3-5] (i) において、磁化プラトーの発生には周期構造に伴う内部自由度が本質的である。一方、(ii) では、相互作用の競合が本質的な役割を果たしており、磁化プラトーの出現は自発的対称性の破れを伴う。

前述のように、 CaV_4O_9 はプラケット構造を持ち、更にプラケット間結合に競合関係がある。従って磁化過程には異なる起源を持つ 2 種類のプラトー、即ち、プラケット構造によるものとプラケット間結合の競合に由来するものが見られる可能性がある。これまで、 CaV_4O_9 に対する興味は 2 次元系にお

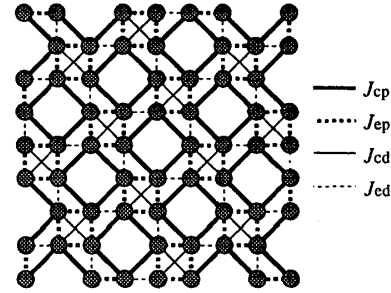


図 1: 1/5-depleted square lattice の構造。丸はスピンを表し、4 種類の線は交換相互作用を表す。

るスピングャップという点に集中していたが、磁化過程という観点からも非常に興味深い物質である。以下、主としてプラケット間結合を摂動とする摂動展開を用いて、ハミルトニアン (1) にゼーマン項 $-HM (M \equiv \sum_n S_n^z)$ を加えた系の振る舞いを調べていく。

§2. 有効ハミルトニアン (1 次摂動)

J_{cp} (以下、エネルギーの単位とし 1 とおく) で形成される 1 つのスピンプラケットの固有状態は、エネルギーが -2, 0 の 2 種類の 1 重項状態、エネルギーが -1, 0, 0 の 3 種類の 3 重項状態、エネルギーが 1 の 5 重項状態である。これより、スピンプラケットにおいて、 $1 < H < 2$ で磁化は飽和磁化の半分に固定されることがわかる。(以後、簡単のため、1 (3, 5) 重項状態という名称を各多重項状態でエネルギー最低のものうち、全スピンの z 成分が最大のものに対して用いることにする。) スピンプラケットが N 個集まった系で、磁化 $M (0 \leq M \leq M_S (\equiv 2N))$ を持つ部分空間における最低エネルギー状態は、 $M \leq M_S/2$ では M 個のプラケットが 3 重項状態、残りが 1 重項状態となっている状態であり、 $M_S/2 \leq M$ では $M - M_S/2$ 個のプラケットが 5 重項状態、残りが 3 重項状態となっている状態である。プラケット間結合を摂動として取り扱い、これらの状態で張られる空間に対する有効ハミルトニアンを求めると、

$0 \leq M \leq M_S/2$ に対する $\mathcal{H}_L^{\text{eff}}$ と $M_S/2 \leq M \leq M_S$ に対する $\mathcal{H}_U^{\text{eff}}$ が得られる:

$$\mathcal{H}_\alpha^{\text{eff}} = \mathcal{H}_\alpha^{XXZ} - M_\alpha H_\alpha + C_\alpha \quad (\alpha = L, U) \quad (2)$$

ここで、 \mathcal{H}_α^{XXZ} は最近接 (NN)、次近接 (NNN) 相互作用を持つ正方格子 XXZ モデル

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_\alpha^{XXZ} = & J_1 \sum_{(i,j) \in \text{NN}} \{ I_{\alpha,i}^z I_{\alpha,j}^z + \Delta_{1,\alpha} [I_{\alpha,i}^x I_{\alpha,j}^x + I_{\alpha,i}^y I_{\alpha,j}^y] \} \\ & + J_2 \sum_{(i,j) \in \text{NNN}} \{ I_{\alpha,i}^z I_{\alpha,j}^z + \Delta_{2,\alpha} [I_{\alpha,i}^x I_{\alpha,j}^x + I_{\alpha,i}^y I_{\alpha,j}^y] \} \quad (3) \end{aligned}$$

である。 $\tilde{I}_{\alpha,i}$ は $S = 1/2$ 演算子であり、 $\alpha = L (U)$ に対し上向きスピン状態 ($I_{\alpha,i}^z = 1/2$) は 3 重項 (5 重項) プラケット状態、下向きスピン状態 ($I_{\alpha,i}^z = -1/2$) は 1 重項 (3 重項) プラケット状態に対応する。又、プラケット間相互作用を $J_{\text{ep}} = \lambda$, $J_{\text{ed}} = \lambda\eta_e$, $J_{\text{cd}} = \lambda\eta_c$ と書くことにすると、式 (3) の交換相互作用は $J_1 = \lambda(2 + \eta_e)/16$, $J_2 = \lambda\eta_c/16$ であり、異方性パラメータは $\Delta_{1,\alpha} = K_\alpha(2 - \eta_e)/(2 + \eta_e)$, $\Delta_{2,\alpha} = K_\alpha$ ($K_L = 16/3$, $K_U = 4$) で与えられる。磁化 $M_\alpha (\equiv \sum_i I_{\alpha,i}^z)$ はもとのモデルの磁化 M と $M_L = M - N/2$, $M_U = M - 3N/2$ という関係を持つ。磁場 H_α は $H_L = H - 1 - \lambda(2 + \eta_e + \eta_c)/8$, $H_U = H - 2 - 3\lambda(2 + \eta_e + \eta_c)/8$ で定義されており、 C_α は定数項である。

式 (2) の有効ハミルトニアンより、 $M/M_S = 1/2$ でのプラケット構造に由来するプラトーのほか、プラケット間相互作用によっては \mathcal{H}_L^{XXZ} (\mathcal{H}_U^{XXZ}) が Ising universality class に属してイジングギャップを持ち $M_L(M_U) = 0$ にプラトーを生じること、即ち、もとのモデルで $M/M_S = 1/4(3/4)$ にプラトーが現れることが期待される。

$M/M_S = 1/2$ のプラトーに対する臨界磁場 $H_{1/2}^\pm$ ($H_{1/2}^- < H_{1/2}^+$) は、有効ハミルトニアンの飽和磁場に対応し容易に求められる。 $2\eta_c \leq 2 - \eta_e$ の場合、それらは

$$H_{1/2}^- = 1 + \lambda(22 - 5\eta_e - 5\eta_c)/12, \quad (4)$$

$$H_{1/2}^+ = 2 - \lambda(2 - 3\eta_e - 3\eta_c)/4, \quad (5)$$

となる。これより CaV_4O_9 の臨界磁場として $H_{1/2}^- = 1.70$, $H_{1/2}^+ = 2.24$ が得られる。

一方、 $M/M_S = 1/4$, $3/4$ でのプラトーの有無を調べるため、 \mathcal{H}_α^{XXZ} の基底状態相図を Holstein-Primakoff 変換を用いた $1/S$ 展開によって調べた。その結果、基底状態相図として図 2 が得られた。図中、TSNZ はスピンが z 軸方向を向いた 2 副格子

ネール状態を、TSNX(FSNX) はスピンが xy 面内に倒れた 2(4) 副格子ネール状態を表す。 CaV_4O_9 では、 $J_2/J_1 = 7.6 \times 10^{-2}$, $\Delta_{1L} = 1.65$, $\Delta_{1U} = 1.24$ であり、これは図 2 中の \times 印に相当する。 \mathcal{H}_L^{XXZ} , \mathcal{H}_U^{XXZ} の双方に対し、 CaV_4O_9 は TSNX 相に属し、従って CaV_4O_9 では $M/M_S = 1/4$, $3/4$ でのプラトーは見られないという結論を得る。しかしながら、図 2(b) において、 \times 印は TSNX 相と TSNZ 相間の境界線のごく近傍にあり、従って CaV_4O_9 は $M/M_S = 3/4$ のプラトー/非プラトー転移点のごく近くに位置していることになる。

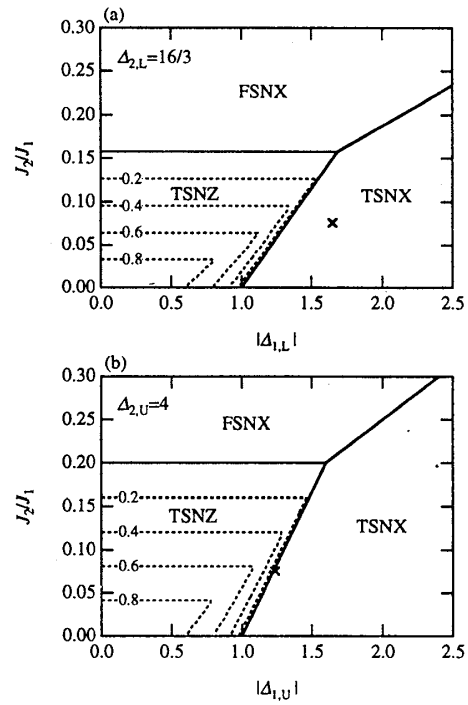


図 2: $1/S$ 展開法での (a) \mathcal{H}_L^{XXZ} 及び (b) \mathcal{H}_U^{XXZ} に対する基底状態相図。実線は相境界、TSNZ 相中の破線は $2J_1$ を単位とするイジングギャップの等高線である。 \times 印が CaV_4O_9 に対応している。

§3. CaV_4O_9 の磁化曲線

臨界磁場 $H_{1/2}^\pm$ の摂動展開は、Gelfand の方法 [6] を用いることにより系統的に次数を上げていくことが可能であり、 $H_{1/2}^\pm$ を定量的に決定する為、4 次までの級数展開を求めた。これを用いると、 CaV_4O_9 に対し $H_{1/2}^- = 1.76$, $H_{1/2}^+ = 2.23$ なる結果が得られる。更に、 CaV_4O_9 の磁化曲線を求めるため、 $N = 2, 4, 5, 8$ の系を周期境界条件のもとで対角化した。前章の結果を受け、 CaV_4O_9 の磁化曲線は

$M/M_S = 1/2$ のところにのみプラトーを持つと仮定して有限系の階段状の磁化曲線のステップの中点をプロットしたものが図 3 である。図中、摂動展開による臨界磁場は×印で示されている。有限系での臨界磁場はサイズの増加に伴い摂動展開の結果に近づいていくこと、その他の点に関してサイズ依存性は小さいことが見て取れる。上述の臨界磁場は通常単位系で、 $H_{1/2}^- = 214$, $H_{1/2}^+ = 271$ (T) となる。これらの臨界磁場は大きく、実際の測定を直ちに行うことは困難と思われるが、最近、数百 T という高磁場下での測定例も報告されており、[7] 将来的に実測されると期待される。

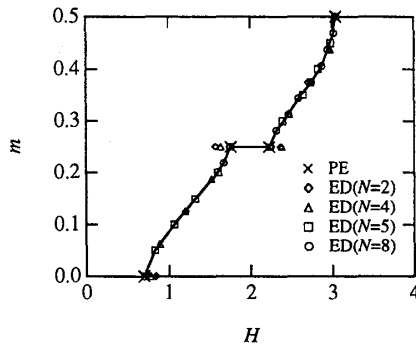


図 3: CaV_4O_9 の磁化曲線。×印は 4 次摂動 (PE) の結果、その他のシンボルは有限系 ($N = 2, 4, 5, 8$) の対角化 (ED) の結果を表している。

§4. プラトー/非プラトー転移の臨界指数

ここでは、ブラケット構造をもつ正方格子ハイゼンベルグ反強磁性体 ($\eta_e = \eta_c = 0$) を例にとり、 $M = M_S/2$ に対するプラトー/非プラトー転移の臨界指数を求める。前章では η_e, η_c が有限の場合について 4 次までの級数展開を行ったが、 $\eta_e = \eta_c = 0$ に限ると、Gelfand の方法を適用する際に考慮すべきクラスターの数に格段に減り、展開の次数をもう 1 次上げることができる。これを実行し、プラトーの幅 $\delta H_{1/2} \equiv H_{1/2}^+ - H_{1/2}^-$ に対する 5 次までの級数を作り、プラトー/非プラトー転移点 ($\equiv \lambda_c$) 近傍で $(\lambda_c - \lambda)^\nu$ なる振舞いを仮定して ratio method により級数を解析した。得られた ratio plot は図 4 に示されている。 $1/\delta H_{1/2}$ の展開係数の比 r_l (l : 次数) は、期待されるように $1/l$ に関し直線となっており、転移点、臨界指数として $\lambda_c = 0.29 \pm 0.01$, $\nu = 0.7 \pm 0.2$ が得られた。2 次元系のプラトー/非プラトー転移の universality class は 3 次元古典 XY

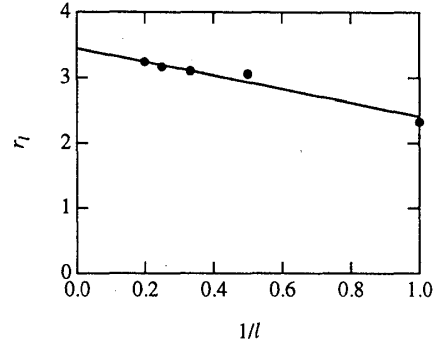


図 4: $1/\delta H_{1/2}$ の展開係数の比 r_l の $1/l$ 依存性。実線は漸近形 $r_l = \lambda_c^{-1} [1 + (\nu - 1)/l]$ ($\lambda_c = 0.29$, $\nu = 0.7$) である。

モデルであるという議論がなされている。[8] この場合、 $\nu = 0.67$ が期待されるが、これは上述の結果と矛盾しない。

§5. まとめ

1/5-depleted square lattice 上のハイゼンベルグ反強磁性体の磁化過程を摂動展開、有限サイズクラスタの対角化によって調べた。その結果、 CaV_4O_9 では $214 < H < 271$ (T) で磁化が一定値 $M = M_S/2$ をとること、又、 $M = 3M_S/4$ のプラトー/非プラトー転移点の近傍に位置することが明らかになった。更に、級数展開の方法を用いて、ブラケット構造をもつ正方格子ハイゼンベルグ反強磁性体のプラトー/非プラトー転移の臨界指数を求め、3 次元古典 XY モデルと符合する結果を得た。

謝辞

2 次元系のプラトー/非プラトー転移について御教示頂いた戸塚圭介氏 (九大理) に感謝します。

参考文献

- 1) S. Taniguchi *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 2758.
- 2) K. Kodama *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 793; Y. Fukumoto and A. Oguchi: J. Phys. Soc. Jpn. **67** (1998) 2205; K. Takano and K. Sano: J. Phys. Soc. Jpn. **67** (1998) 4209.
- 3) K. Hida: J. Phys. Soc. Jpn. **63** (1994) 2359.
- 4) T. Tonegawa *et al.*: Physica B **246-247** (1998) 368.
- 5) K. Totsuka: Phys. Rev. B **57** (1998) 3454.
- 6) M. P. Gelfand: Solid State Commun. **98** (1996) 11.
- 7) A. S. Dzurak *et al.*: Physica B **246-247** (1998) 40.
- 8) K. Totsuka: private communication.